

PATENT  
IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re the Application of )  
 )  
LIN, et al. ) Art Unit: Not Assigned  
 )  
Serial No.: Not Assigned ) Examiner: Not Assogmed  
 )  
Filed: Concurrently herewith )  
 ) Attorney Docket No. 6233.350  
Title: PHENOLIC GROUP-CONT  
 )  
TAINING PHOSPHONITE )  
COMPOUND AND PRO- )  
CESS FOR MAKING THE )  
SAME )

Hon. Commissioner of Patents  
And Trademarks  
Washington, D.C. 20231

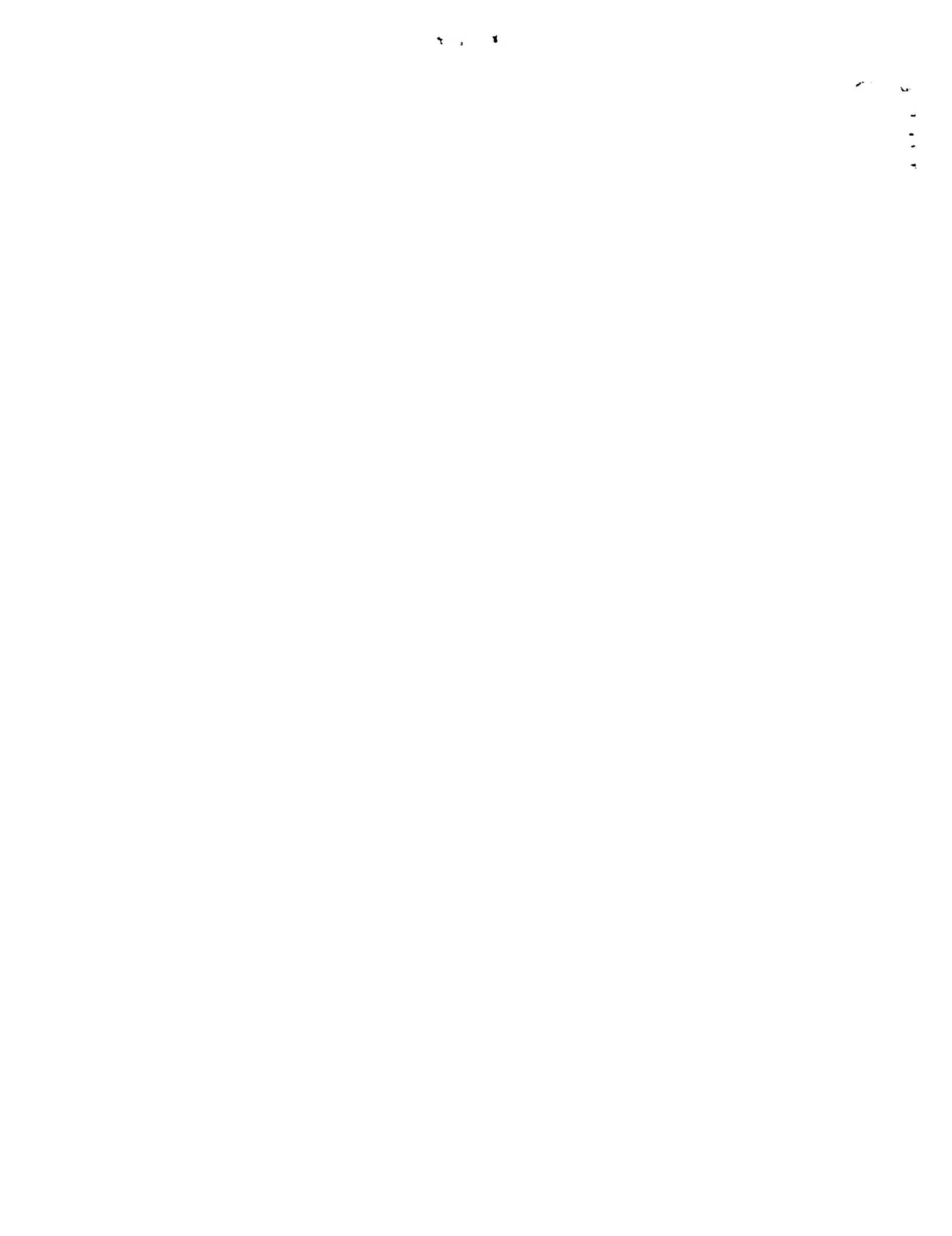
Sir:

**SUBMISSION OF PRIORITY DOCUMENT**

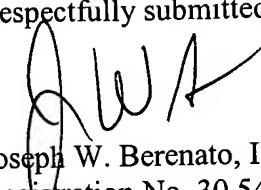
It is respectfully requested that this application be given the benefit of the foreign filing date under the provisions of 35 U.S.C. §119/365 of the following certified copy of which is submitted herewith.

<u>Application No.</u>	<u>Country of Origin</u>	<u>Filed</u>
092108102	Taiwan	04/09/2003

It is believed that no fees are due for this submission. Should that determination be incorrect, then please debit Account 50-0548, and notify the undersigned.



Respectfully submitted,



Joseph W. Berenato, III  
Registration No. 30,546  
Attorney for Applicant

Liniak, Berenato & White, LLC  
6550 Rock Spring Drive, Ste. 240  
Bethesda, Maryland 20817  
(301)896-0600





# 中華民國經濟部智慧財產局

INTELLECTUAL PROPERTY OFFICE  
MINISTRY OF ECONOMIC AFFAIRS  
REPUBLIC OF CHINA

茲證明所附文件，係本局存檔中原申請案的副本，正確無訛，  
其申請資料如下：

This is to certify that annexed is a true copy from the records of this  
office of the application as originally filed which is identified hereunder:

申請日：西元 2003 年 04 月 09 日  
Application Date

申請案號：092108102  
Application No.

申請人：奕益實業有限公司  
Applicant(s)

局長  
Director General

蔡練生

發文日期：西元 2003 年 5 月 21 日  
Issue Date

發文字號：09220496900  
Serial No.



# 發明專利說明書

(填寫本書件時請先行詳閱申請書後之申請須知，作※記號部分請勿填寫)

※ 申請案號：\_\_\_\_\_ ※IPC分類：\_\_\_\_\_

※ 申請日期：\_\_\_\_\_

## 一、發明名稱

(中文) 新穎之亞膦酸酯系化合物及其製備方法與作為安定劑之應用

(英文) Novel Phosphonite-based Compounds, and Their Preparation Method and Use as Stabilizer

## 二、發明人(共 2 人)

### 發明人 1 (如發明人超過一人，請填說明書發明人續頁)

姓名：(中文) 林素芳

(英文) \_\_\_\_\_

住居所地址：(中文) 台北市羅斯福路三段 135 號 5 樓

(英文) \_\_\_\_\_

國籍：(中文) 中華民國 (英文) \_\_\_\_\_

## 三、申請人(共 1 人)

### 申請人 1 (如申請人超過一人，請填說明書申請人續頁)

姓名或名稱：(中文) 奕益實業有限公司

(英文) \_\_\_\_\_

住居所或營業所地址：(中文) 台北市羅斯福路三段 135 號 5 樓

(英文) \_\_\_\_\_

國籍：(中文) 中華民國 (英文) \_\_\_\_\_

代表人：(中文) 林素芳

(英文) \_\_\_\_\_

繢發明人或申請人續頁 (發明人或申請人欄位不敷使用時，請註記並使用續頁)



### 發明人 1

姓名 : (中文) 蘇清鑑  
(英文)

住居所地址 : (中文) 台北市和平東路二段 96 巷 10 巷 4 號 5 樓之 1  
(英文)

國籍 : (中文) 中華民國 (英文)

### 發明人 2

姓名 : (中文)  
(英文)

住居所地址 : (中文)  
(英文)

國籍 : (中文) (英文)

### 發明人 3

姓名 : (中文)  
(英文)

住居所地址 : (中文)  
(英文)

國籍 : (中文) (英文)

### 發明人 4

姓名 : (中文)  
(英文)

住居所地址 : (中文)  
(英文)

國籍 : (中文) (英文)

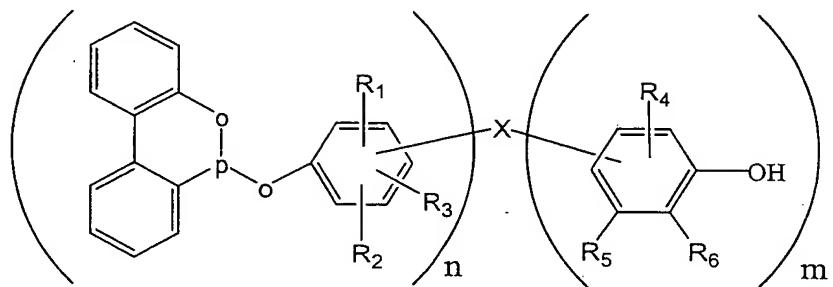
### 發明人 5

姓名 : (中文)  
(英文)

住居所地址 : (中文)  
(英文)

國籍 : (中文) (英文)

於本案中所揭示的是一種具有下列化學式(I)之新穎的亞膦酸酯系化合物：

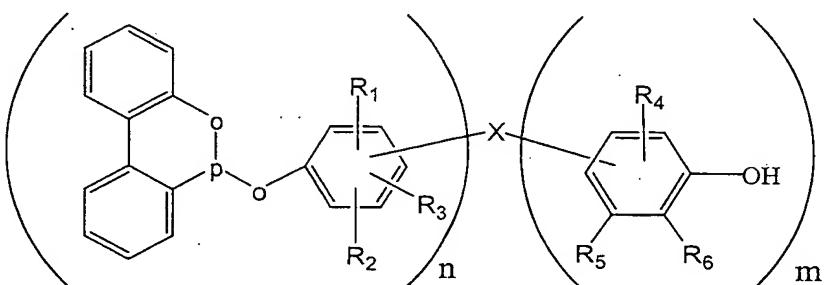


(I)

其中各取代基之定義係如說明書與申請範圍中所界定者。本案亦揭示此系列化合物之製備方法，以及此系列化合物在聚合物之製造上作為安定劑的應用。

## 伍、英文發明摘要

Disclosed herein are novel phosphonite-based compounds of formula (I) :



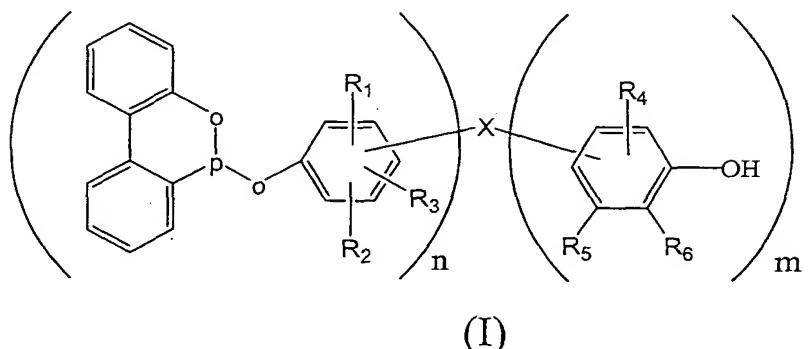
(I)

wherein each of the substituents is given the definition as set forth in the Specification and Claims. Also disclosed are the preparation method of these compounds and their uses as a stabilizer in the manufacture of various polymers.

(二)、本代表圖之元件代表符號簡單說明：

無

案、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化  
學式。



**說明一、聲明事項**

本案係符合專利法第二十條第一項第一款但書或第二款但書規定之期間，其日期為：\_\_\_\_\_

本案已向下列國家（地區）申請專利，申請日期及案號資料如下：

【格式請依：申請國家（地區）；申請日期；申請案號 順序註記】

1. \_\_\_\_\_

2. \_\_\_\_\_

3. \_\_\_\_\_

主張專利法第二十四條第一項優先權

【格式請依：受理國家（地區）；日期；案號 順序註記】

1. \_\_\_\_\_

2. \_\_\_\_\_

3. \_\_\_\_\_

4. \_\_\_\_\_

5. \_\_\_\_\_

6. \_\_\_\_\_

7. \_\_\_\_\_

8. \_\_\_\_\_

9. \_\_\_\_\_

10. \_\_\_\_\_

主張專利法第二十五條之一第一項優先權

【格式請依：申請日；申請案號 順序註記】

1. \_\_\_\_\_

2. \_\_\_\_\_

3. \_\_\_\_\_

主張專利法第二十六條微生物

國內微生物 【格式請依：寄存機構；日期；號碼 順序註記】

1. \_\_\_\_\_

2. \_\_\_\_\_

3. \_\_\_\_\_

國外微生物 【格式請依：寄存國名；機構；日期；號碼 順序註記】

1. \_\_\_\_\_

2. \_\_\_\_\_

3. \_\_\_\_\_

熟習該項技術者易於獲得，不須寄存。

### 【發明所屬之技術領域】

本發明是有關於一種新穎之亞膦酸酯系(phosphonite-based)化合物及其製備方法與作為安定劑(stabilizer)之應用，特別是指一種可作為安定劑而被添加於聚合物中以防止聚合物大量氧化之亞膦酸酯系化合物。

### 【先前技術】

#### 發明背景

一般聚合物在製造與使用時，常面臨因受熱、氧化等因素而造成非所欲之劣化(degradation)，因此，一般會於聚合物中添加用以防止聚合物劣化之安定劑，而其中用以防止聚合物氧化分解之安定劑稱為抗氧化劑(antioxidants)。

在聚合物中添加抗氧化劑可避免或延緩氧化反應發生而延長聚合物之壽命。透過動力學的研究顯示，聚合物之氧化分解係因一系列的自由基反應所致，亦即，一旦聚合物中產生了一自由基，即會與氧氣反應生成另一自由基，並啟始一連串的鏈反應，使聚合物遭到破壞。據研究，引發氧化反應發生之自由基的產生可能是受到光、熱或其他機械外力的影響，也可能是外來自由基的作用所導致。

一般而言，抗氧化劑主要分為一次抗氧化劑(primary antioxidants；或稱為鏈終止抗氧化劑)與二次抗氧化劑(secondary antioxidants；或稱為氫過氧化物分解型抗氧化劑)兩大類型。一次抗氧化劑主要係由立體空間上被阻礙之酚(phenols)，或二級之芳胺所構成，其可與過

5 氧化自由基 (peroxy radicals) 快速反應，而終止正常溫度下之自由基反應；習知之二次抗氧化劑則主要為硫化物或亞磷酸酯 (phosphites)，其可經由異種溶解反應機構 (heterolytic mechanism) 與氫過氧化物 (hydroperoxides) 進行反應，而產生無自由基的產物。

10 在聚合物的製造或保存方面，工業上常將一次與二次抗氧化劑以適當的比例混合使用，使得聚合物可同時因循兩種不同的方式以避免氧化。依研究顯示，將一次與二次抗氧化劑合併使用，在抗氧化之效能上可更為提昇。在歐洲專利 EP 0000354 中揭示經取代之 6-苯氧基-二苯 [c,e]-[1,2] 呔亞磷酸酯與酚系抗氧化劑之合併使用可提升抗氧化能力。

15 然而，一次與二次抗氧化劑併用時仍存有一缺點，即該等抗氧化劑本身之分子量並不小，易因受熱而分解或揮發，因此，當被添加至聚合物中作為安定劑使用時，一般會有熱安定性不佳之問題，例如，雙鍵化工股份有限公司以其一次抗氧化劑 Chinox 1010 (酚系抗氧化劑) 與二次抗氧化劑 Chinox 168 (亞磷酸酯系抗氧化劑) 以 1:4 的比例互相混合使用，雖可得到良好的抗氧化效果，但熱安定性較差，尤其是 Chinox 168 對溫度之重量損失很大，當溫度達 350°C 時 Chinox 168 會全數分解。因此，一次抗氧化劑與二次抗氧化劑合併使用時，仍有無法滿足業界實用之處。

在聚合物用之抗氧化分解型安定劑的發展歷程中，除

了前述，已有不少研究係被投注於亞膦酸酯 (phosphonites) 系化合物上，譬如已揭露於德國專利說明書 (G.B. Pat. Specification) 第 1,256,180 號之 6-苯氧基-二苯 [c,e]-[1,2] 唔亞膦酸酯 (6-phenoxy-dibenz[c,e][1,2]oxaphosphorine)、第 2,034,887 號之 6-(2,6-二第三丁基-4-甲基苯氧基)-二苯 [c,e]-[1,2] 唔亞膦酸酯 (6-(2,6-ditert-butyl-4-methyl-phenoxy)-dibenz [c,e]-[1,2]-oxaphosphorine)，以及 US 4,276,232 中之 6-(2,4-二第三丁基-辛基-苯氧基)-二苯 [c,e]-[1,2] 唔亞膦酸酯 (6-(2,4-di-tert.-octyl-phenoxy)-dibenz[c,e]-[1,2]oxaphosphorine)，還有 EP 0223739、US 4,185,006、US 4,380,515，以及 US 4,661,440 中揭示的亞膦酸酯系化合物等。上述各個專利在此被併入本案以為參考資料。

雖然上述亞膦酸酯系抗氧化劑因具有較大之分子量，而可能具有較前述酚系一次或亞磷酸酯系二次抗氧化劑為佳之熱安定性，惟因可供選擇之種類有限，故在聚合物用之抗氧化分解型安定劑的實用上，仍有繼續研發不同新穎之化合物的需求。

### 【發明內容】

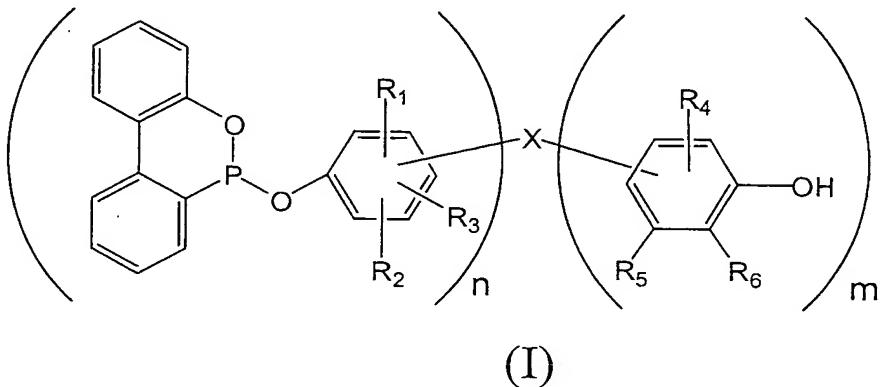
#### 20 發明概要

本發明人為獲得同時具有酚系抗氧化劑與亞磷酸酯系抗氧化劑之雙重作用，且展現良好之耐熱性與抗氧化的安定劑，而發展出將具有較大分子量之酚基團與亞膦酸酯基團設計於同一分子結構中之概念；因此，本發明中首先提

5

10

供一種具有下列化學式(I)之新穎的亞膦酸酯系化合物，其分子結構中兼具一次與二次抗氧化劑之有效結構(酚基(phenolic group)與亞膦酸酯基)，可同時達到一次與二次抗氧化劑之功能，且因本發明之亞膦酸酯系化合物具有較大之分子量(主要來自酚基基團部分的貢獻)，故相較於習知之一次、二次抗氧化劑，其熱安定性可獲得改善。



其中，

n與m各為1至3的整數，且n+m為2至4的整數；

15 R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>、R<sub>5</sub>、R<sub>6</sub>各自分別表示：氫或C<sub>1</sub>-C<sub>18</sub>烷基；

當n+m=2時，X為可選擇性地被C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>烷基取代之C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>伸烷基(alkylene)，或硫；

當n+m=3時，X為C<sub>3</sub>-C<sub>7</sub>之脂肪族基團所構成的三價部分(trivalent moiety)；

20 當n+m=4時，X為C<sub>4</sub>-C<sub>10</sub>之脂肪族基團所構成的四價部分。

另一方面，本發明亦提供該具有化學式(I)之化合物的製備方法。

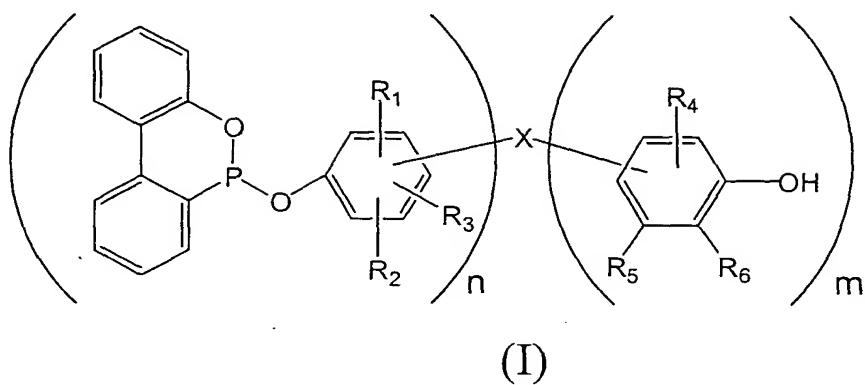
再者，本發明之具有化學式(I)之化合物可被添加於聚合物中作為安定劑用，因此，本發明亦提供一主要包含

化學式(I)之化合物的聚合物用之安定劑。

【實施方式】

據上所述，本發明首先提供一種具有下列化學式(I)之化合物：

5



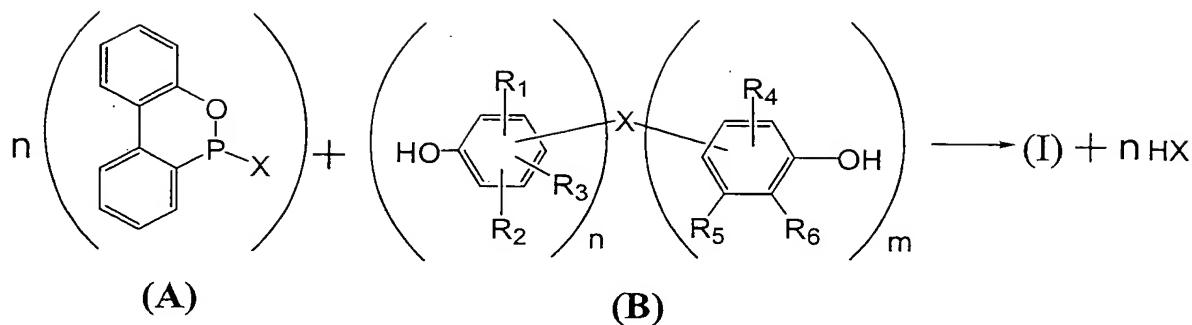
10

15

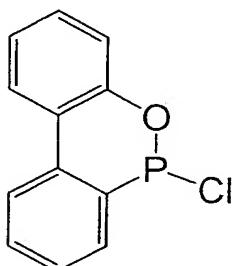
其中，n 與 m 各為 1 至 3 的整數，且  $n+m$  為 2 至 4 的整數； $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$ 、 $R_4$ 、 $R_5$ 、 $R_6$  各自分別表示：氫或  $C_1-C_{18}$  烷基；當  $n+m=2$  時，X 為可選擇性地被  $C_1-C_6$  烷基取代之  $C_1-C_8$  伸烷基，或硫；當  $n+m=3$  時，X 為  $C_3-C_7$  之脂肪族基團所構成的三價部分；當  $n+m=4$  時，X 為  $C_4-C_{10}$  之脂肪族基團所構成的四價部分。

20

根據本發明，該具有化學式(I)之亞磷酸酯系化合物的合成，可參照習知方法來進行，尤其是酯化(esterification)或是交酯化(transesterification)，譬如可藉由下列分別以化學式(A)表示之亞磷酸酯以及以(B)表示的酚(至少具有二個酚基基團之較大分子量的酚)反應脫去  $HX$  而得，如下反應式( $n(A) + (B) \rightarrow (I) + nHX$ )所示：



其中，以(B)表示之酚中各取代基的定義係如上述化學式(I)，而(A)中之X表示一反應性基團，諸如鹵素(尤其是Cl)；烷氧基(alkoxy)；或是經取代或未經取代之苯氧基(phenoxy)。在本發明之一具體例中，係使用X為Cl之亞膦酸酯(A1)來作為反應起始物。

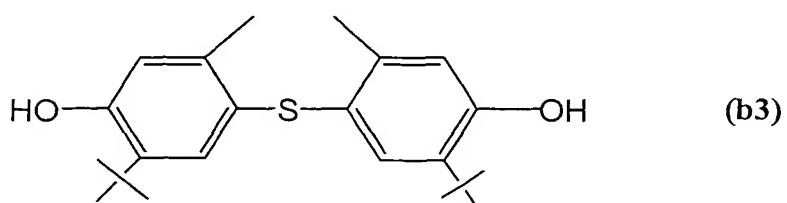
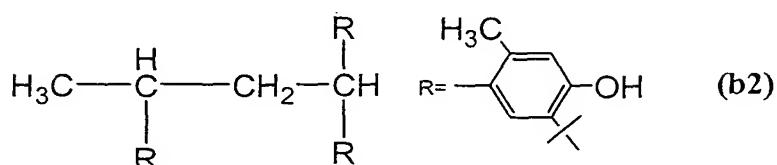
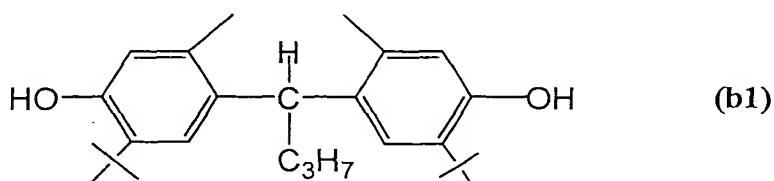


(A1)

一般而言，上述之合成反應係於非酸性(中性或鹼性)環境下進行。當於中性環境下進行時，較佳之反應溫度為介於常溫與 150°C 之間；而該鹼性環境之提供可藉由下列所構成之群組中的鹼(base)存在下來達成：胺(amine)(例如，三乙胺(triethylamine))、吡啶(pyridine)、N,N-二甲基苯胺(N,N-dimethylaniline)、碳酸鈉，以及其等之組合。較佳地，該等鹼係被配置於一惰性溶劑中，譬如非質子性溶劑，諸如石油醚、甲苯、二甲苯、甲乙酮、乙腈或乙酸乙

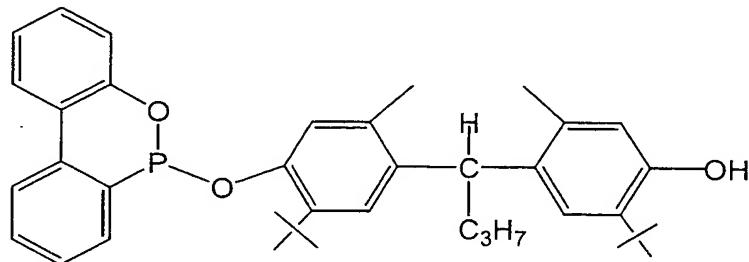
酯等。另外，當以胺來提供鹼性環境時，可使用過量的胺來同時作為溶劑。有關合成反應可參照德國公開公報 Offenlengungsschrift No. 2,034,887 之內容。

5 製備本發明之式(I)化合物時所使用的起始物，即亞  
膦酸酯(A)與酚(B)可採用已知且可藉一習知方法製得者，  
譬如亞膦酸酯(A)之製備可參見德國公開公報  
Offenlengungsschrift No. 2,034,887 之內容；而酚(B)起始  
物則可直接使用市售商品，例如下列商品化之酚(b1)係購  
自台灣長春公司，品名 AO-40；(b2)、(b3)係購自 Great  
10 Lake 公司，品名各為 LOWINOX CA22 以及 LOWINOX  
TBM-6。在本發明之一具體例中，係使用(b1)來作為酚起  
始反應物。



本發明合成之新穎的亞膦酸酯化合物(I)的一具體例

為，n 與 m 皆為 1，並且 X 為丙基伸甲基 (propylmethylene)，R<sub>1</sub> 與 R<sub>4</sub> 皆為甲基，而 R<sub>2</sub> 與 R<sub>6</sub> 皆為第三丁基，以及 R<sub>3</sub> 與 R<sub>5</sub> 皆為氫之化合物 (Ia)，亦即 6-(4,4'-亞丁基-2-t-丁基-5-甲基酚-2'-t-丁基-5'-甲基苯氧基-  
5 二苯[c,e]-[1,2]噁亞膦酸酯 (6-(4,4'-butylidene-2-t-butyl-5-methylphenol-2'-t-butyl-5'-methylphenoxy)-dibenz[c,e]-[1,2]oxaphosphorine)，(Ia)結構式如下：



該具體例的熱安定性確實較前述習知之二次抗氧化劑為佳，尤其是相較於目前業界最常使用之 Chinox 168  
15 ；於氮氣的環境下，當溫度高達 400°C 時，該新穎之亞膦酸酯化合物之具體例仍有 48% 的重量。

另，本發明之具有化學式(I)的化合物可被添加於聚合物中作為安定劑用，因此，本發明亦提供一聚合物用之安定劑，其主要包含前述本發明之具有化學式(I)的新穎亞膦酸酯化合物。  
20

本發明之式(I)化合物做為安定劑而被添加於聚合物以製成聚合物組成物時，以組成物之總重計，較佳之添加量為 0.005~5 重量% (50~50,000 ppm)。更佳地，係於聚合物中添加 0.05~0.5 重量% (500~5000 ppm) 之本發明

式(I)化合物。本發明的聚合物用安定劑主要包含具有化學式(I)的化合物，其中之一具體例係如前述之(Ia)。

本發明之聚合物用安定劑適用的範圍包括聚烯烴系聚合物，例如聚乙稀(PE)、聚丙稀(PP)、及其共聚物等，聚苯乙稀及其共聚物，例如 ABS 等，聚醯胺(polyamide)，線性聚酯(linear polyester)，聚胺基甲酸酯(polyurethane)，聚碳酸酯(polycarbonate)，彈性體(elastomer)，聚氯乙稀(polyvinyl chloride)，以及其等之組合。在本發明之聚合物用安定劑在一些具體例中，係添加於 PP、PE 以及 ABS 中，且透過各種物性測試顯示其具有效之抗氧化性與安定效果。

本發明之聚合物用安定劑，除主要包含以化學式(I)表示之新穎的亞膦酸酯化合物之外，可進一步包含酚系及/或亞磷酯系抗氧化劑，合併使用的結果亦可達良好之安定(抗氧化)效果。其中，酚系抗氧化劑可舉例如 Chinox 1010、Chinox 1076，或其等之組合；而亞磷酯系抗氧化劑可舉例如 Chinox 618、Chinox 168，或其等之組合。

以下將進一步藉具體實施態樣說明本發明，惟該等實施態樣僅為例示說明之用，而非用以限制本發明。

20 <實施例>

<物性測試>

本發明中用以測量黃變值( $b=+yellow/-blue$ )、流動係數(MI，Melt Index；單位為 g/10min)及黃色度(YI，

Yellowness Index) 值等物性之儀器，為 BYK Garden 公司生產之機型為 Color-guide 45/0 的色差計 (spectrophotometer)，所使用之標準測試方法為 ASTM D-1925，測試結果具有較高 b 值與 MI 值者代表黃變與老化較嚴重。而所使用之押出機為台灣原順公司所製造之 5 SEX-45 型押出機。

<試劑規格>

(i) 6-氯基-二苯 [c,e]-[1,2] 嘴亞膦酸酯 (6-chlorodibenz[c,e]-[1,2]oxaphosphorine)：依據德國公開公報 10 Offenlengungsschrift No. 2,034,887 所合成。

(ii) 4,4'-亞丁基雙 (2-t-丁基-5-甲基酚) (4,4'-butylidenebis(2-t-butyl-5-methylphenol))；長春化工公司製，品名 AO-40。

(iii) Chinox 1010(品名)：台灣雙鍵化工公司製，學名為肆 15 亞甲基 (3,5-di-t-丁基-4-羥基氫亞桂皮酯) 甲烷 (tetrakismethylene(3,5-di-t-butyl-4-hydroxyhydrocinnamate)mathane)。

(iv) Chinox 1076：台灣雙鍵化工公司製，學名為十八烷基 20 3-(3',5'-di-t-丁基-4'-羥基-苯基)丙酯 (octadecyl 3-(3',5'-di-t-butyl-4'-hydroxy-phenyl)propionate)。

(v) Chinox 168：台灣雙鍵化工公司製，學名為三(2,4-di-t-丁基苯基)亞磷酸酯 (tris(2,4-di-t-butylphenyl)phosphite)。

(vi) Chinox 618：台灣雙鍵化工公司製，學名為環狀新戊

發明說明 (11)

烷四基雙(十八烷基亞磷酸酯)(cyclic neopentanetetrayl bis(octadacyl phosphite))。

(vii) 聚丙烯(PP)：台灣永嘉公司製，型號 2020。

(viii) 聚乙烯(PE)：台塑公司製，型號 Formosa 9003。

5 (ix) 丙烯-丁二烯-苯乙烯三元共聚物(ABS)：台灣奇美公司製，品名 Chimei 757。

### 合成例

6-(4,4'-亞丁基-2-t-丁基-5-甲基酚-2'-t-丁基-5'-甲基苯氧基-二苯[c,e]-[1,2]噁亞磷酸酯之製備：

10 將 46.95g (0.2mole) 的 6-氯基-二苯[c,e]-[1,2]噁亞磷酸酯、84.26g 的 4,4'-亞丁基雙(2-t-丁基-5-甲基酚、120ml 的三乙胺與 350ml 的甲苯同置於反應容器內，將溫度控制於 80°C，反應時間為 18 小時。待反應完成後將溶液過濾，並將該溶液擺置於 0°C 環境下，而有合成物結晶自甲苯中產生。藉此合成之產物即為 6-(4,4'-亞丁基-2-t-丁基-5-甲基酚-2'-t-丁基-5'-甲基苯氧基-二苯[c,e]-[1,2]噁亞磷酸酯，產率為 90%，熔點範圍為 75±5°C。

### 安定劑種類

20 以下各應用例中，使用數種習知之抗氧化劑以及上述本案之合成例單獨或組合併用來製成聚合物用之安定劑，並被添加於聚合物中混合成聚合物組成物，並利用色差計進行物性測試，以評估本案合成例對聚合物之安定(抗氧化)效果(不論是單獨使用或與其他抗氧化劑併用)，有關各安定劑組合(A~F)定義如下：(以下比例為重量比)

- A : Chinox 1076/Chinox 168=1/2 ;
- B : Chinox 1010/Chinox 168=1/4 ;
- C : 合成例單獨使用 ;
- D : 合成例/Chinox 168=1/1
- 5 E : 合成例/Chinox 1010=1/1 ;
- F : 合成例/Chinox 168/Chinox 1010=2/1/1 ;
- G : Chinox 1076/Chinox 618=1/2 ;
- H : 合成例/Chinox 618=1/1 ;
- I : 合成例/Chinox 1076=1/1 ;
- 10 J : 合成例/Chinox 1076/Chinox 618=2/1/1 。

### 應用例 1

將 100 份之聚丙烯粒子、1200ppm 的硬脂酸鈣(以聚丙烯之重量計)以及 B~F 安定劑(分別之用量列於表 1 及表 2 中)混合。上述各式混合物在 230°C 下以單螺桿擠壓機 (single screw extruder) 陸續地壓出五次。表 1 及表 2 顯示出各安定劑在避免材料黃變及衰化的有效性測試。

結果：由表 1 可看出，本案合成例之添加使聚丙烯展現出良好的色彩穩定性(b 值變動較小)。表 2 中流動係數之升高代表聚丙烯之衰化，並且在多次押出後，本案合成例展現較佳之穩定性。

### 應用例 2

將 100 份之聚乙烯粒子、1200ppm 的硬脂酸鈣(以聚乙烯之重量計)以及 A~F 安定劑(分別之用量列於表 3 及表 4 中)混合。上述各式混合物在 200°C 下以單螺桿擠壓機陸

續地壓出五次。表 3 及表 4 中同時顯示出各安定劑在避免材料黃化及材料交聯兩方面的有效性測試結果。

結果：由表 3 與表 4 可看出，本案合成例之添加使聚乙烯展現出優良的色彩與防衰化的穩定性。

### 應用例 3

將 100 份的 ABS 樹脂粒子與各式安定劑(種類及用量如表 5 所示)混合。該等混合物在 220°C 之溫度下利用單螺旋桿擠壓機進行混合。在各式混合物被置於烘箱(180°C)中熟化之前，先以色差計測量黃色度，當各式混合物被置於烘箱中熟化 2 小時之後，再次測試黃色度以與熟化前的黃色度作比較，測試結果見於表 5。

結果：表 5 顯示，本案合成例在 ABS 樹脂中展現良好的色彩穩定度。

15

表 1

安定劑種類	添加量 (ppm)	數次壓出後的 b 值			
		第 0 次	第 1 次	第 3 次	第 5 次
空白樣品	—	-0.75	-0.11	1.22	2.54
B	500	-1.52	-1.02	-0.31	0.25
B	1000	-1.60	-1.19	-0.76	-0.27
C	500	-1.82	-1.68	-1.05	-0.91
C	1000	-1.85	-1.72	-1.34	-1.07
C	2000	-1.90	-1.82	-1.68	-1.52
D	1000	-1.80	-1.70	-1.08	-0.92
E	1000	-1.78	-1.70	-1.12	-0.95
F	1000	-1.80	-1.71	-1.15	-0.97

表 2

安定劑種類	添加量 (ppm)	數次壓出後的 MI 值			
		第 0 次	第 1 次	第 3 次	第 5 次
空白樣品	—	4.5	5.1	6.2	8.3
B	500	4.2	4.8	5.8	6.5
B	1000	4.1	4.6	5.3	5.6
C	500	3.2	3.3	3.6	4.0
C	1000	3.0	3.1	3.2	3.4
C	2000	3.0	3.1	3.1	3.2
D	1000	3.1	3.2	3.4	3.8
E	1000	3.1	3.2	3.4	3.7
F	1000	3.0	3.2	3.5	3.7

表 3

安定劑種類	添加量 (ppm)	數次壓出後的 b 值			
		第 0 次	第 1 次	第 3 次	第 5 次
空白樣品	—	-0.85	1.05	2.85	4.2
A	500	-1.29	-1.03	-0.4	-0.2
A	1000	-1.51	-0.87	0.77	1.66
B	500	-1.81	-1.69	-0.96	-0.78
B	1000	-2.48	-2.12	-1.02	-0.02
C	500	-2.32	-2.25	-1.66	-0.87
C	1000	-2.13	-2.21	-1.86	-1.07
C	2000	-2.25	-2.22	-2.02	-1.68
D	1000	-2.26	-2.21	-1.75	-1.00
E	1000	-2.18	-2.20	-1.76	-1.02
F	1000	-2.24	-2.21	-1.80	-1.05

表 4

安定劑種類	添加量 (ppm)	數次壓出後的 MI 值			
		第 0 次	第 1 次	第 3 次	第 5 次
空白樣品	—	0.25	0.19	0.12	0.10
A	500	0.25	0.2	0.15	0.14
A	1000	0.25	0.25	0.23	0.21
B	500	0.25	0.21	0.18	0.16
B	1000	0.25	0.25	0.23	0.20
C	500	0.25	0.25	0.23	0.21
C	1000	0.25	0.26	0.26	0.25
C	2000	0.25	0.26	0.25	0.25
D	1000	0.25	0.25	0.24	0.23
E	1000	0.25	0.25	0.25	0.26
F	1000	0.25	0.25	0.24	0.25

表 5

安定劑種類	添加量 (ppm)	數次壓出後的 YI 值		
		初始 YI 值	熟化 2 小時後之 YI 值	YI 值的變化量 ( $\Delta YI$ )
空白樣品	—	14	75	61
C	1000	11	52	41
G	1000	12	60	48
H	1000	12	57	45
I	1000	12	58	46
J	1000	11	55	44

5

綜上所述，本發明之該具有化學式(I)之亞膦酸酯系化合物的優點為，在單一的化合物上即包含一次抗氧化劑(酚基)及二次抗氧化劑(亞膦酸酯基)的結構，可同時發揮兩類有效抗氧化基團之功能，且另一方面，本案之亞膦酸酯系化合物具有較習知一次或二次抗氧化劑為大的分子量，因此，相較於習知之一次或二次抗氧化劑(尤其是

Chinox 168)，較不易因受熱而分解或揮發，亦即具有較佳之熱安定性，因此，在作為安定劑而被添加至聚合物時，不易轉移至聚合物表面而散失。並且由上述各應用例可知，當主要包含有化學式(I)之亞膦酸酯系化合物的安定劑，當被添加至聚合物時，的確具有良好之抗氧化性，使聚合物無論在 b、MI 或 YI 值上之表現都呈現優良的安定性。

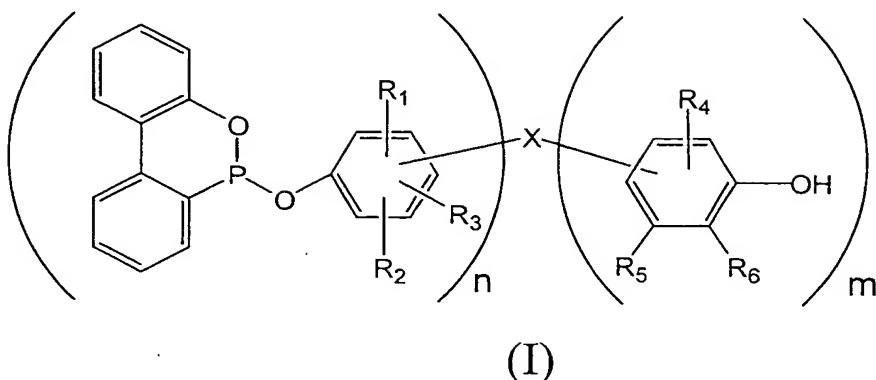
雖然本發明已藉由上述詳細說明以及較佳實施例來予以闡釋，本發明不應被解釋為受之所限制；相對地，本發明實係涵蓋，當熟知此項技藝者從本案發明說明書所揭示的技術內容與實施來考量時，可以做出的多種其他不同等效變化及與修飾。因此，在不偏離本發明之精義下，大凡依本發明申請專利範圍及發明說明書內容所作之簡單的等效變化與修飾，皆應仍屬本發明專利涵蓋之範圍內。

【圖式簡單說明】

15

無

1. 一種具有下列化學式(I)之化合物：



其中，

n與m各為1至3的整數，且n+m為2至4的整數；

R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>、R<sub>5</sub>、R<sub>6</sub>各自分別表示：氫或C<sub>1</sub>-C<sub>18</sub>烷基；

當n+m=2時，X為可選擇性地被C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>烷基取代之C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>伸烷基，或硫；

當n+m=3時，X為C<sub>3</sub>-C<sub>7</sub>之脂肪族基團所構成的三價部分；

當n+m=4時，X為C<sub>4</sub>-C<sub>10</sub>之脂肪族基團所構成的四價部分。

2. 如申請專利範圍第1項之化合物，其中n與m皆為1，且X為被C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>烷基取代之伸甲基。

3. 如申請專利範圍第2項之化合物，其中X為丙基伸甲基，R<sub>1</sub>與R<sub>4</sub>皆為甲基，而R<sub>2</sub>與R<sub>6</sub>皆為第三丁基，以及R<sub>3</sub>與R<sub>5</sub>皆為氫。

4. 一種聚合物用之安定劑，主要包含如申請專利範圍第1項之以化學式(I)表示的化合物。

5. 如申請專利範圍第4項之聚合物用之安定劑，其中該化學式(I)中，n與m皆為1，且X為被C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>烷基取代之伸甲基。

6. 如申請專利範圍第5項之聚合物用之安定劑，其中X為丙基